

О ПОДАВЛЕНИИ УШИРЕНИЯ МЕССБАУЭРОВСКОЙ ЛИНИИ, ОБУСЛОВЛЕННОГО НЕОДНОРОДНЫМ ИЗОМЕРНЫМ СДВИГОМ

Ю.Каган

Анализируется подавление неоднородного уширения, основанное на чувствительности СТС к локальному изменению плотности и возможности регулировать масштаб изменения СТС внешними параметрами. Для этого могут быть использованы внешнее магнитное поле H в случае металлов, параметры H и T в случае парамагнетиков, сдвиги частот от резонанса при ЯМР на возбужденном и (или) основном уровне ядра

1. Возможность наблюдения сверхузких мессбауэровских линий и проблема получения стимулированного γ -излучения на основе использования долгоживущих изомерных состояний наталкивается на огромные трудности, связанные с неоднородным уширением линии за счет любого рода локальных искажений среды [1]. Особую опасность здесь представляет изомерный сдвиг, чувствительный к значению локальной электронной плотности

$$\delta\omega_i = \gamma \left| \frac{\Delta V_o}{V_o} \right| \quad (1)$$

($\left| \frac{\Delta V_o}{V_o} \right|$ — относительное изменение объема элементарной ячейки). В

частности, вызываемое им уширение сохраняется и при использовании тех радиочастотных методов, которые предлагаются для подавления неоднородного уширения, вызываемого сверхтонкими взаимодействиями [2].

Однако при наличии хорошо разрешенной сверхтонкой структуры в принципе имеется возможность скомпенсировать неоднородный сдвиг, если принять во внимание, что само значение расщепления уровней в возбужденном ("1") и основном ("0") состояниях зависит от $|\frac{\Delta V_o}{V_o}|$ через

распределение спиновой плотности электронов (например, d - и f -электронов или s -электронов при контактном взаимодействии) или через значение градиента электрического поля, т. е.

$$\delta \omega_h^{(s)} = \xi^{(s)} |\frac{\Delta V_o}{V_o}|, \quad s = 0, 1. \quad (2)$$

Тогда можно достичь подавления, если создать условия, при которых $\xi^{(s)}$ менялось бы непрерывно с изменением внешних параметров с тем, чтобы для фиксированной компоненты перехода

$$\gamma + \xi^{(1)} - \xi^{(0)} = 0 \quad (3)$$

Впервые на одну такую возможность, связанную с использованием радиочастотного метода, указали Гольданский, Калягин и Намиот [3].

2. Наиболее просто и физически прозрачно такая компенсация, по крайней мере принципиально, может быть достигнута в непереходных металлах, помещенных в сильное магнитное поле. В этом случае компоненты зеемановского расщепления ядерных уровней испытывают сдвиги, пропорциональные плотности подмагниченных электронов проводимости на ядре (сдвиг Найта в ЯМР — см., например., [4]) и таким образом ведут себя в соответствии с (2). При этом

$$\xi^{(s)} \sim \zeta \mu_B H \quad (4)$$

($\zeta = \left| \frac{\Delta H}{H} \right|$ — относительный сдвиг Найта в данном металле), и мы можем непрерывно менять коэффициенты в (2), меняя магнитное поле H .

К сожалению коэффициенты ζ не велики (10^{-2} для наиболее тяжелых металлов), так что использовать этот метод можно только применяя экстремально высокие поля и ядра с ограниченной величиной изомерного сдвига.

Другая возможность возникает при использовании парамагнетика во внешнем магнитном поле при условии быстрой релаксации электронного спина. В этом случае сверхтонкое расщепление представляет собой зеемановское расщепление в эффективном поле H_{eff} , пропорциональном среднему значению электронного момента $\langle \vec{\mu}_s \rangle$, которое определяется значениями поля H и температуры T . Изменение зеемановского расщепления при локальном изменении плотности, очевидно, будет также пропорционально $\langle \vec{\mu}_s \rangle$. В результате,

$$\xi^{(s)} = \xi^{(s)}(H, T) \quad (5)$$

и меняя поле и температуру, мы можем удовлетворить условие (3), если, как это в большинстве случаев и бывает, в насыщении

$$\xi_{max}^{(s)} > \gamma \quad (6)$$

(для одного или обоих значений s).

3. При выполнении неравенства (6) интересная возможность для подавления уширения появляется при использовании переменного магнитного поля с частотой ω , близкой к резонансной для возбужденного или основного состояния ядра. При этом предполагается, что Зеемановское расщепление создается эффективным магнитным полем за счет сверхтонкого взаимодействия в магнитоупорядоченных кристаллах или в парамагнетиках в условиях, рассмотренных выше. В принципе возможно использование и квадрупольного расщепления, если только для соответствующего ξ будет справедливо условие (6).

Предположим для простоты, что спин рассматриваемого состояния ядра равен $1/2$. Пусть переменное поле амплитуды $H_{\perp} (\omega_{\perp} = \mu_{\text{Я}} H_{\perp} / \hbar)$ вращается с частотой ω в плоскости, перпендикулярной H_{eff} ($\omega_h = \mu_{\text{Я}} H_{eff} / \hbar$). Тогда для спиновой части волновой функции ядра имеем известное решение (см. [5])

$$\psi_{1/2} = e^{-i\omega t/2} [A_1 e^{i\Omega t} + A_2 e^{-i\Omega t}], \quad (7)$$

$$\psi_{-1/2} = e^{i\omega t/2} \left[A_1 \frac{\omega_{\perp}}{\frac{\omega}{2} + \omega_h + \Omega} e^{i\Omega t} + A_2 \frac{\omega_{\perp}}{\frac{\omega}{2} + \omega_h - \Omega} e^{-i\Omega t} \right], \quad (8)$$

$$\Omega = \sqrt{(\omega/2 + \omega_h)^2 + \omega_{\perp}^2}$$

Разность фаз волновой функции в (7) для определенной проекции спина и соответствующей функции во втором состоянии ядра определяет фактически энергию фиксированной сверхтонкой компоненты γ -перехода. При этом сдвиг энергии перехода, обусловленный вариацией H_{eff} целиком определяется изменением Ω . Обозначим среднее значение ω_h отвечающее регулярному значению H_{eff} через $\tilde{\omega}_h$. Тогда при условии

$$|\delta\omega_h| \ll |\Delta|, \quad |\Delta| \ll \omega_{\perp}, \quad (9)$$

$$\Delta = \frac{\omega}{2} + \tilde{\omega}_h$$

имеем

$$\delta\Omega = \omega_{\perp} + \frac{\Delta}{\omega_{\perp}} \delta\omega_h. \quad (10)$$

Отсюда следует, что сдвигаясь от точного резонанса ($\Delta = 0$), т. е. меняя Δ , мы будем непрерывно менять один из коэффициентов $\xi^{(s)}$, и если резонанс отвечает уровню с большим магнитным моментом, то при определенном Δ мы достигнем условия компенсации (3). Необходимая линейная зависимость $\delta\Omega$ от $\delta\omega_h$ имеет место только при выполнении неравенства (9). Поэтому подавлено может быть только уширение за счет малых сдвигов $|\delta\omega_h| \ll \omega_{\perp}$, но именно малые сдвиги и представляют наибольшую опасность для всей проблемы получения сверхузких линий [1]. Естественно, что желательно иметь максимально возможное значение H_{\perp} и что одновременно существует требование на время релаксации $\tau_{\text{я}}$ ядерного спина $\omega_{\perp} \gg 1$.

4. В тех случаях, когда состояния, отвечающие сверхтонкой структуре, хотя бы частично носят смешанный электронно-ядерный характер, возможно существенное увеличение $(\omega_1)_{eff}$ за счет того, что переходы осуществляются через поворот электронного спина [4]. Большое $(H_1)_{eff}$, необходимое для справедливости результатов работы [3], по-видимому, должно достигаться именно таким путем. Однако в этом случае существует трудность, связанная с необходимостью иметь очень большое время релаксации, но теперь уже для электронного спина.

5. Если осуществить одновременно резонанс отдельно на возбужденном и основном состоянии, то появляются два независимых внешних параметра

$$\Delta^{(o)} / \omega_1^{(o)} \quad \text{и} \quad \Delta^{(1)} / \omega_1^{(1)}.$$

Теперь, помимо взаимной компенсации сдвигов (1), (2), обусловленных локальным изменением плотности, можно одновременно подавить сдвиги $\delta \omega_h^{(s)}$, вызываемые, например, наиболее выраженным типом искажения формы элементарной ячейки или определенной компонентой поля, создаваемой дефектом на больших расстояниях. Предполагается только, что между $\delta \omega_h^{(o)}$ и $\delta \omega_h^{(1)}$ существует пропорциональность

$$\delta \omega_h^{(o)'} = \eta \delta \omega_h^{(1)'}. \quad (11)$$

Идея состоит в том, чтобы отходом от резонанса сделать равными сдвиги в $\delta \Omega^{(s)}$ для возбужденного и основного состояния ядра, т. е. одновременно с (3) удовлетворить условию

$$\frac{\Delta^{(1)}}{\omega_1^{(1)}} = \eta \frac{\Delta^{(o)}}{\omega_1^{(o)}}. \quad (12)$$

На соотношение между коэффициентами $\xi^{(o)}/\gamma$, $\xi^{(1)}/\gamma$ и η существуют ограничения, которые легко найти непосредственно, принимая во внимание (9). Это приводит к ограничению на варианты переходов, для которых возможно двухпараметрическое подавление уширения.

Автор признателен Гольданскому, Карягину и Намиоту за ознакомление с работой [3] до ее публикации.

Институт атомной энергии
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
26 апреля 1974 г.

Литература

- [1] В.И.Гольданский, Ю.Каган. УФН, 110, 445, 1973; Доклад на V конференции по мессбауэровской спектроскопии. Братислава, 1973.
- [2] Ю.А.Ильинский, Р.В.Хохлов. УФН, 110, 449, 1973; ЖЭТФ, 65, 1619, 1973.
- [3] В.И.Гольданский, С.В.Карягин, В.А.Намиот. Письма в ЖЭТФ, 19, 625, 1974.
- [4] А.Абрагам. Ядерный магнетизм. ИИЛ, Москва, 1963.
- [5] Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц. Квантовая механика. ГИФМЛ, Москва, 1963.